

магнитной структуры моменты Cu1 и Cu2 считались одинаковыми, а проекции, величина которых не превосходила двух стандартных ошибок, полагались равными нулю).

В  $Tm_2Cu_2O_5$  реализуется представление  $\Gamma_2 (A_i^x, G_i^y, F_i^z; a_j^x, g_j^y, f_j^z)$ . Соответствующая магнитная структура изображена на рис. 2, а численные значения ее параметров приведены в табл. 2. Представление  $\Gamma_2$  допускает ферромагнитные составляющие моментов меди ( $F_i^z$ ) и туния ( $f_j^z$ ) вдоль оси [001]. Величина спонтанного момента на формульную единицу  $M_0 = 5.4$  (4)  $\mu_B$ , в основном связанного с редкой землей, согласуется с данными магнитных измерений [3]. Можно предположить, что среди множества разнообразных фазовых переходов, наблюдавшихся в  $R_2Cu_2O_5$  во внешнем поле и интерпретированных как метамагнитные [3], имеются переходы спиновой переориентации в фазу  $\Gamma_2$ , приводящие к появлению ферромагнитной составляющей.

В заключение отметим, что в обоих случаях мы не обнаружили какихлибо изменений магнитной структуры при температуре  $T_1$ , соответствующей второму максимуму восприимчивости [3].

#### Список литературы

- [1] Плахтий В. П., и др. // Письма в ЖЭТФ. 1990. Т. 51. № 1. С. 45—47.
- [2] Плахтий В. П., Боннэ М. и др. // Письма в ЖЭТФ. 1990. Т. 51. № 12. С. 637—630.
- [3] Kazei Z. A. et al. // J. Magn. Mag. Mat. 1990. V. 86. N 1. P. 124—134.
- [4] Wilts D. B., Young R. A. // J. Appl. Cryst. 1982. V. 15. N 3. P. 430—438.
- [5] Hewat A. W. Harwell Rep. N AERE-R7350. 1973. 69 p.
- [6] Lander G. H., Brun T. O. // J. Chem. Phys. 1970. V. 53. N 4. P. 1387—1391.
- [7] Freeman A. J., Desclaux J. P. // J. Magn. Mag. Mat. 1979. V. 12. N 1. P. 11—21.

Институт ядерной физики  
им. Б. П. Константинова АН СССР  
Санкт-Петербург

Поступило в Редакцию  
27 мая 1991 г.

УДК 546.87.86.24

© Физика твердого тела, том 33, № 11, 1991

Solid State Physics, vol. 33, N 11, 1991

#### ЭЛЕКТРОФИЗИЧЕСКИЕ ПАРАМЕТРЫ ЭПИТАКСИАЛЬНЫХ ПЛЕНОК $n\text{-Bi}_2\text{Te}_3$

Ю. А. Бойков, О. С. Грибанова, В. А. Данилов, В. А. Кутасов

Исследование пленочных эпитаксиальных систем на основе халькогенидов висмута и сурьмы представляет значительный интерес для получения информации о фундаментальных физических параметрах данного класса материалов, обладающих слоистой структурой.

Одним из необходимых условий эпитаксиального роста пленок является высокая подвижность конденсируемых атомов и молекул на поверхности подложки. Миграционная способность частиц, адсорбируемых на поверхности формируемого слоя, как известно, зависит от кинетической энергии, приобретенной ими в процессе испарения исходного материала, и температуры подложки  $T_p$ . В случае теллурида висмута, однако, имеется ряд обстоятельств, затрудняющих повышение  $T_p$ : а) теллурид висмута сублимируется инконгруэнтно [1]; б) упругости пара отдельных компонент и соединений, образующихся в результате сублимации исходного материала существенно различаются; в) имеют место значительные различия в коэффициентах прилипания молекул  $\text{Te}_2$ ,  $\text{BiTe}$ ,  $\text{Bi}_2$  и т. д. на поверхности разогретых подложек. Указанные особенности роста пленок  $\text{Bi}_2\text{Te}_3$  из паровой фазы обусловливают высокую концентрацию ( $n=$

$=10^{19} \div 10^{20} \text{ см}^{-3}$ ) носителей заряда в конденсатах, поскольку избыточные атомы компонент в теллуриде висмута являются электрически активными.

Существенно поднять температуру конденсации, исключив при этом неконтролируемую потерю испаряемого материала, позволяет метод горячей стенки [2]. В [3] исследованы особенности формирования методом горячей стенки пленок  $\text{Bi}_2\text{Te}_3$  и  $\text{Bi}_{0.5}\text{Sb}_{1.5}\text{Te}_3$  с дырочной проводимостью. При введении в исходную шихту  $\text{Bi}_2\text{Te}_3$  избыточного теллура (до 2 ат. %) тип проводимости в конденсатах не изменялся, т. е. парциальное давление

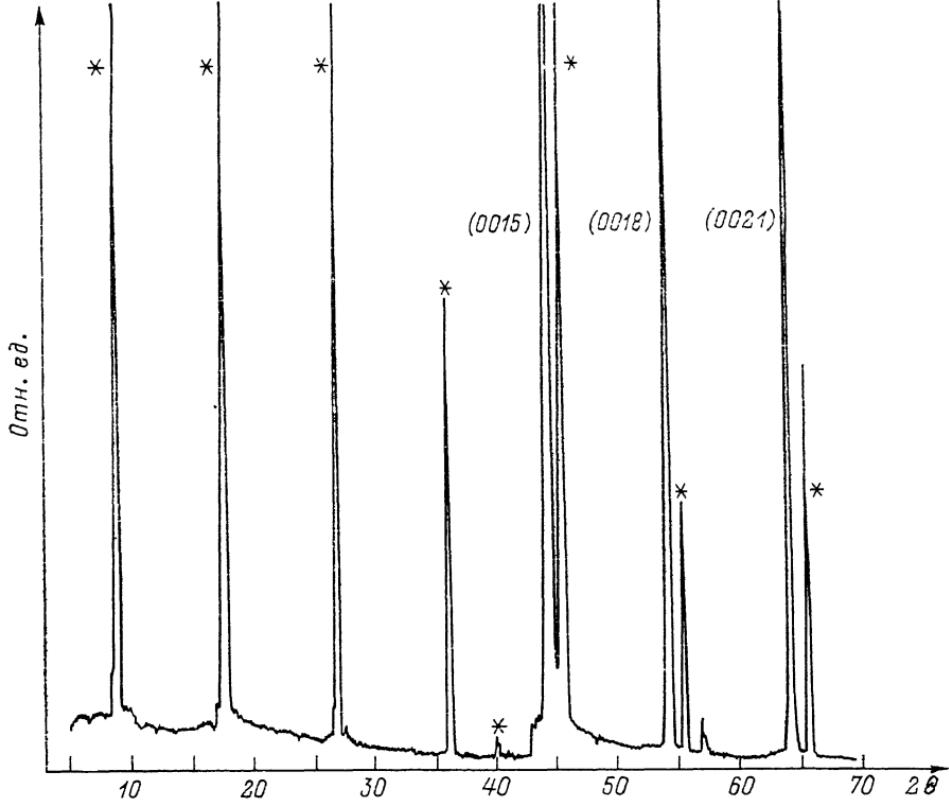


Рис. 1. Дифрактограмма, снятая в режиме  $\theta - 2\theta$ , для пленки  $n\text{-Bi}_2\text{Te}_3$  № 2 (см. таблицу).

теллура в ростовой камере оказалось недостаточным, чтобы заметно снизить вероятность образования антиструктурных дефектов акцепторной природы (атомы висмута в местах расположения теллура), которая убывает при повышении плотности молекул Тe, адсорбированных на поверхности осаждаемого слоя. При высоких температурах конденсации ( $T_n > 600 \text{ K}$ ) основным процессом, определяющим плотность адсорбированных на свободной поверхности формируемой пленки молекул теллура  $N_{\text{Te}}$ , является их реиспарение, при этом

$$N_{\text{Te}} = R\tau, \quad (1)$$

где  $R$  — поток молекул теллура на поверхность формируемой пленки;  $\tau$  — время жизни адсорбированной молекулы Тe на поверхности пленки

$$\tau = v^{-1} \exp(E_a/kT_n),$$

$v$  — параметр, зависящий от частоты колебания адсорбированной молекулы;  $E_a$  — дифференциальная теплота адсорбции молекул теллура. Как следует из (1), повышение плотности молекул теллура на поверхности формируемой пленки может быть обеспечено как за счет увеличения  $R$ , так и  $\tau$ , однако во втором случае необходимо снизить температуру кон-

Номер пленки	$d$ , мкм	$T_n$ , К	$P_{Te}$ , Торр	$n_x \cdot 10^{-18}$ , см $^{-3}$
1	1.47	640	4	1.6
2	1.20	610	2	8.1
3	0.95	580	1	12.0

денсации, что отрицательно сказывается на процессе эпитаксиального роста слоя. Метод горячей стенки позволяет контролируемым образом изменять  $R$  путем варьирования парциального давления халькогена  $P_{Te}$  в ростовой камере,  $R \sim P_{Te}$ .

В данной работе для получения пленок  $Bi_2Te_3$  с электронной проводимостью в ростовую камеру был введен дополнительный источник халькогена (теллура). Упругость пара халькогена в ростовой камере варьировалась путем изменения температуры его источника. В качестве исходного

материала использовался сплав  $Bi_2Te_3$  стехиометрического состава ( $\alpha = 190 \text{ мкВ} \cdot \text{К}^{-1}$  при 300 К), подложками являлись свежие сколы слюды мусковит. Фазовый анализ и определение ориентации оси третьего порядка в кон-

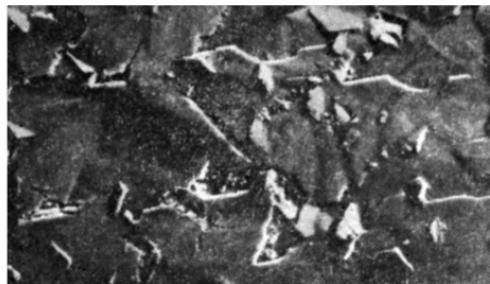


Рис. 2. Электронно-микроскопический снимок поверхности для пленки  $n\text{-}Bi_2Te_3$  № 2 (см. таблицу).

денсатах проводились с помощью дифрактометра Philips PW 1710. Сформированные при  $T_n > 580$  К пленки  $n\text{-}Bi_2Te_3$  являлись блочно-моноокристаллическими, ось  $C$  перпендикулярна плоскости подложки. На рис. 1, 2 приведены дифрактограмма, полученная в режиме  $\theta = 2\theta$ , и снимок свободной поверхности для пленки  $n\text{-}Bi_2Te_3$ , сконденсированной при  $T_n = 610$  К.

Для получения пленок с электронной проводимостью при более высоких температурах конденсации приходилось существенно повышать парциальное давление халькогена в ростовой камере. В таблице приведены данные о холловской концентрации электронов  $n_x = 1/(R_x e)$  в пленках  $n\text{-}Bi_2Te_3$ , приготовленных при различных  $T_n$  и  $P_{Te}$ . При  $T_n = 640$  К обеднение конденсаторов халькогеном вследствие его реиспарения удавалось скомпенсировать лишь при увеличении  $P_{Te}$  в ростовой камере до 4 Торр. Варьирование условий приготовления пленок позволяло изменять концентрацию электронов в пределах  $1 \cdot 10^{18} - 5 \cdot 10^{19} \text{ см}^{-3}$ .

На рис. 3, 4 показано изменение с температурой электропроводности  $\sigma$ , коэффициентов Холла  $R_x$  и термоэдс  $\alpha$  для пленок  $n\text{-}Bi_2Te_3$  с  $n_x < 1.2 \times 10^{19} \text{ см}^{-3}$ . Данные по  $\alpha$ ,  $\sigma$ ,  $R_x$ , полученные для указанных эпитаксиальных пленок  $n\text{-}Bi_2Te_3$  с низкой концентрацией электронов, позволили определить ряд важных параметров зонной структуры. Как известно [4], электропроводность и холловская подвижность  $\mu_x = R_x \sigma$  для однозонной модели в рамках статистики Ферми—Дирака могут быть представлены в виде

$$\sigma = \frac{8\pi e^2}{3m^* h^3} (2m^* kT)^{3/2} \tau_{0p} \Phi_3(\epsilon, b), \quad (2)$$

$$\mu_x = R_x \sigma = \frac{e}{m^*} \tau_{0p} \frac{\Phi_{9/2}(\epsilon, b)}{\Phi_3(\epsilon, b)}, \quad (3)$$

где  $\varepsilon$  — приведенный химический потенциал;  $b^2 = \tau_{0p}/\tau_{0s}$ ;  $\tau_{0p}$  и  $\tau_{0s}$  — не зависящие от энергии коэффициенты в выражениях для времени релаксации электронов при их рассеянии на колебаниях решетки и ионизованных примесях;  $m^*$  — эффективная масса электронов; интегралы  $\Phi_3(\varepsilon, b)$ ,  $\Phi_{0s}(\varepsilon, b)$  табулированы в [4].

В полупроводниках с малой концентрацией носителей заряда в условиях отсутствия вырождения [4]

$$\mu_x \rightarrow \mu_{0x} = \frac{\pi^{1/2}}{2} \frac{e}{m^*} \tau_{0p}. \quad (4)$$

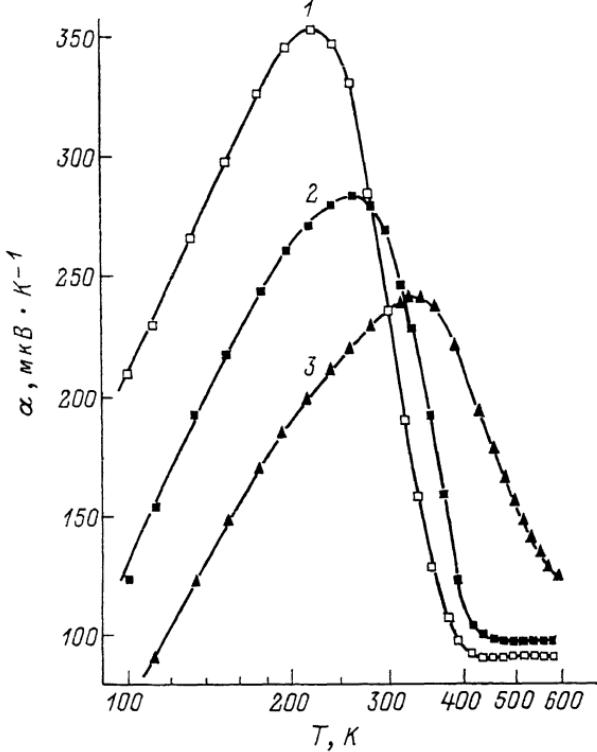


Рис. 3. Температурные зависимости коэффициента термоэдс для исследованных пленок  $n\text{-Bi}_2\text{Te}_3$

Цифры у кривых — номера пленок в таблице.

На рис. 5 показано изменение с температурой  $\mu_x$  для указанных пленок  $n\text{-Bi}_2\text{Te}_3$ . Из приведенных данных следует, что в том случае, когда электронный газ в пленках не вырожден ( $\varepsilon < -1$ , для оценки  $\varepsilon$  использовались данные по  $\alpha$  при условии преобладающего рассеяния электронов на акустических фонах ( $r = -1/2$ )), значения  $\mu_x$  для различных пленок укладываются на одну кривую. Данное обстоятельство с учетом (4) позволило определить температурную зависимость  $\mu_{0x}$  в интервале температур 110–300 К (рис. 5). При  $T = 300$  К  $\mu_{0x} = 375 \text{ см}^2 \cdot \text{В}^{-1} \cdot \text{с}^{-1}$ . В [5] для  $\mu_{0x}$  (300 К) получено значение  $325 \text{ см}^2 \cdot \text{В}^{-1} \cdot \text{с}^{-1}$ , однако исследовались образцы с высокой концентрацией электронов  $n_x > 10^{19} \text{ см}^{-3}$ . Из приведенных на рис. 5 данных следует, что

$$\mu_{0x} \sim T^{-2.35}. \quad (5)$$

Поскольку, согласно [4],  $\tau_{0p} \sim (m^* T)^{-1/2}$ , из (5) с учетом (4) следует, что при  $T = 110 \div 300$  К эффективная масса электронов в  $n\text{-Bi}_2\text{Te}_3$  изменяется пропорционально  $T^{0.32}$ .

Из (3), (4) следует, что

$$\mu_x = \mu_{0x} \frac{2}{\pi^{1/2}} \frac{\Phi_{v/2}(\epsilon, b)}{\Phi_3(\epsilon, b)}. \quad (6)$$

Используя (6) и полученные данные по  $\mu_{0x}$ , определяя  $\epsilon$  из данных по  $\alpha$ , мы сделали оценки  $\mu_x$  при различных  $b$ . Наилучшее согласие с экспериментальными данными достигалось при  $b=0$ , т. е. основным механизмом рассеяния электронов в исследованных пленках при  $T=110 \div 600$  К и  $n_x=10^{18} \div 10^{19}$  см $^{-3}$  является их взаимодействие с колебаниями решетки. Аналогичный вывод сделан из анализа электрофизических параметров объемных образцов  $n$ -Bi<sub>2</sub>Te<sub>3</sub> в [5].

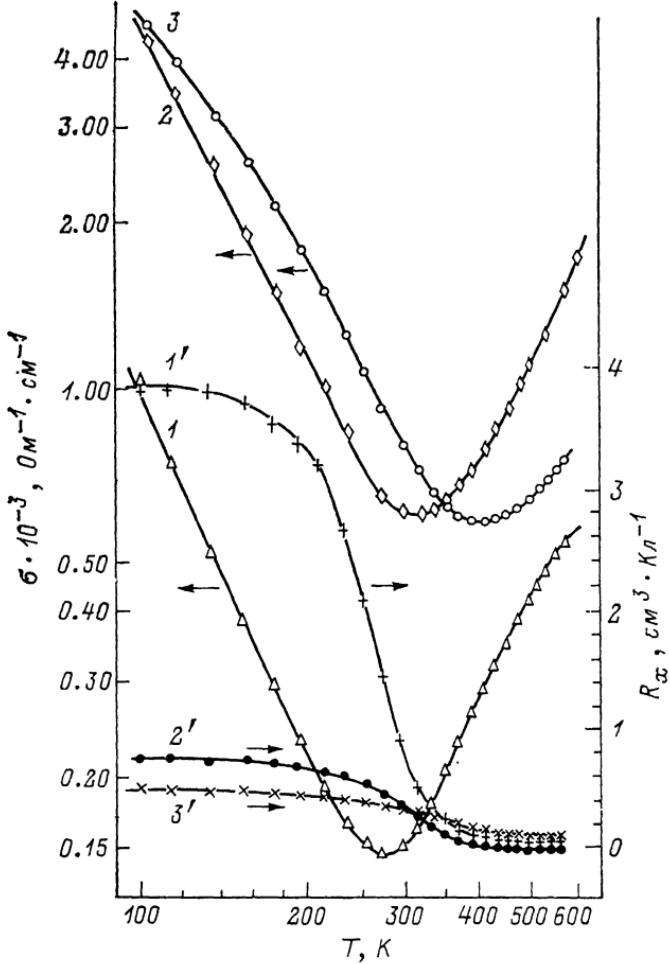


Рис. 4. Температурные зависимости электропроводности (1–3) и коэффициента Холла (1'–3') пленок  $n$ -Bi<sub>2</sub>Te<sub>3</sub> (см. таблицу).

Используя полученные данные по  $\mu_{0x}$ , соотношения (2), (4), можно определить абсолютную величину эффективной массы проводимости. При этом, однако, необходимо учитывать, что измеряемый в эксперименте коэффициент Холла в случае теллурида висмута определяет концентрацию носителей заряда с точностью до фактора анизотропии  $B_\perp$ , т. е.  $R_x = AB_\perp/m$  ( $A$  — холл-фактор). При  $T=150$  К для произведения  $m^*B_\perp^{-2/3}$  получено значение  $1.37 m_0$  (где  $m_0$  — масса свободного электрона). Согласно [6, 7],  $B_\perp$  в  $n$ -Bi<sub>2</sub>Te<sub>3</sub> имеет при  $100 \div 150$  К значения  $0.32 \div 0.34$ . Используя полученные результаты по  $m^*B_\perp^{-2/3}$ , соотношение (4) и  $B_\perp=0.33$  для  $m^*$  и  $\tau_{0p}$ , при  $T=150$  К получаем соответственно  $0.64m_0$  и  $6.2 \cdot 10^{-13}$  с, что достаточно хорошо согласуется с данными, приведенными в [5, 6].

Сравнение данных по  $\sigma$ ,  $R_x$  и  $\alpha$  для исследованных пленок и объемных кристаллов  $n$ -Bi<sub>2</sub>Te<sub>3</sub> с малым отклонением от стехиометрии [5] показывает,

что методом горячей стенки удается приготовить образцы с существенно меньшей концентрацией антиструктурных дефектов.

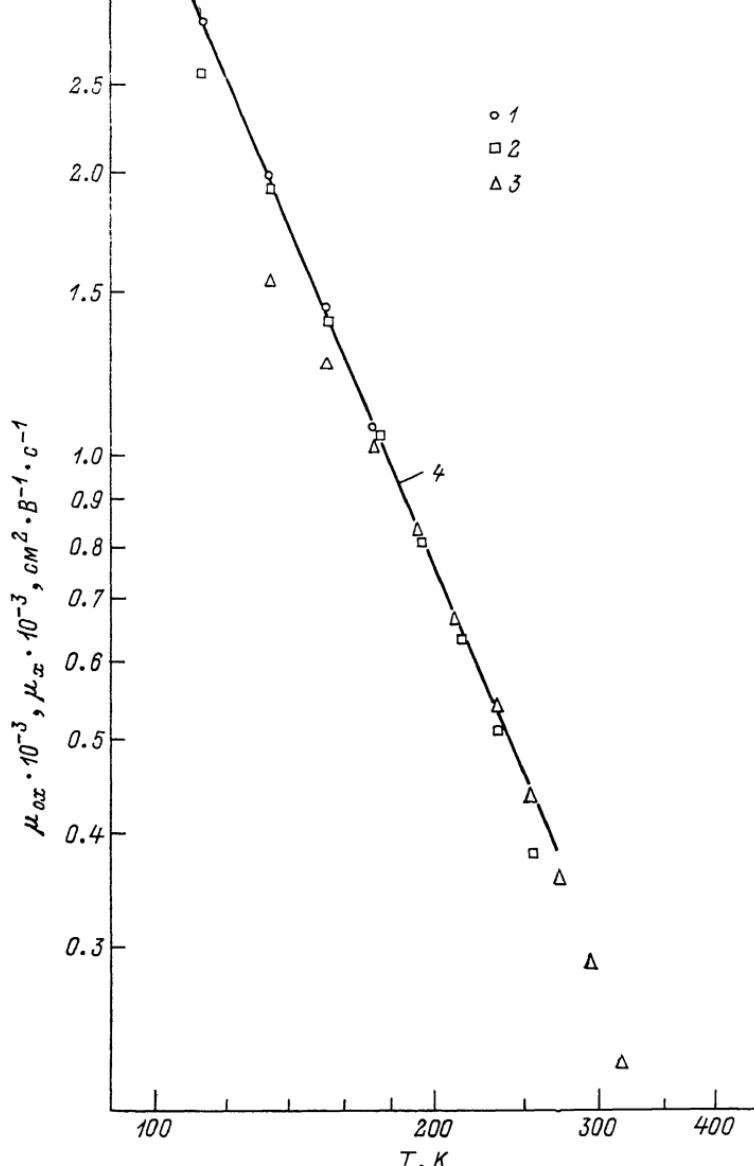


Рис. 5. Температурная зависимость холловской подвижности  $\mu_x$  (1—3) и  $\mu_{0x}$  (4). Цифры 1—3 — номера пленок в таблице.

#### Список литературы

- [1] Зломанов В. П., Новоселова А. В. Р—Т—Х диаграммы состояния систем металл—халькоген. М.: Наука, 1987. С. 207.
- [2] Lopez-Otero A. // Thin Solid Films. 1987. V. 49. P. 3—57.
- [3] Бойков Ю. А., Грибанова О. С., Данилов В. А., Кутасов В. А. // Изв. АН СССР. Неорг. материалы. 1990. Т. 26. № 8. С. 1628—1631.
- [4] Фистуль В. И. Сильно легированные полупроводники. М.: Наука, 1967. С. 415.
- [5] Fleuriot J. P., Gailliard L., Triboulet R., Scherrer H., Scherrer S. // J. Phys. Chem. Solids. 1988. V. 49. N 10. P. 1249—1257.
- [6] Drabble J. R., Groves R. D., Wolfe R. // Proc. Phys. Soc. 1957. V. 71. P. 430.

Физико-технический институт  
им. А. Ф. Иоффе АН СССР  
Санкт-Петербург

Поступило в Редакцию  
4 июня 1991 г.